

Atty. Dkt. No. 040302-0266

IN THE UNITED STATES PATENT AND TRADEMARK OFFICE

Applicant: Hiroyuki ICHIKAWA, et al

Title: REFORMING APPARATUS

Appl. No.: Unassigned

Filing Date: May 25, 2001

Examiner: Unassigned

Art Unit: Unassigned

#2
1-14-02
j1046 U.S. PRO
09/864230
05/25/01

CLAIM FOR CONVENTION PRIORITY

Commissioner for Patents
Washington, D.C. 20231

Sir:

The benefit of the filing date of the following prior foreign application filed in the following foreign country is hereby requested, and the right of priority provided in 35 U.S.C. § 119 is hereby claimed.

In support of this claim, filed herewith is a certified copy of said original foreign application:

- Japanese Patent Application No. 2000-165098 filed June 1, 2000.

Respectfully submitted,

By _____

Glenn Law
Attorney for Applicant
Registration No. 34,371

Date May 25, 2001

FOLEY & LARDNER
Washington Harbour
3000 K Street, N.W., Suite 500
Washington, D.C. 20007-5109
Telephone: (202) 672-5426
Facsimile: (202) 672-5399

J1046 U.S. PTO
09/864230

05/25/01

PATENT OFFICE
JAPANESE GOVERNMENT

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office.

Date of Application: June 1, 2000

Application Number: P2000-165098

Applicant(s): NISSAN MOTOR CO., LTD.

March 2, 2001

Commissioner,
Patent Office

Kozo Oikawa

Number of Certification: 2001-3013219

日本特許庁
PATENT OFFICE
JAPANESE GOVERNMENT

J1046 U.S. PRO
09/864230
05/25/01


別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されて
いる事項と同一であることを証明する。
This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed
with this Office.

出願年月日
Date of Application:

2000年 6月 1日

出願番号
Application Number:

特願2000-165098

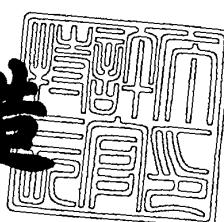
出願人
Applicant(s):

日産自動車株式会社

2001年 3月 2日

特許庁長官
Commissioner,
Patent Office

及川耕造



出証番号 出証特2001-3013219

【書類名】 特許願

【整理番号】 NM99-01367

【提出日】 平成12年 6月 1日

【あて先】 特許庁長官殿

【国際特許分類】 H01M 8/00

【発明の名称】 燃料改質装置

【請求項の数】 9

【発明者】

【住所又は居所】 神奈川県横浜市神奈川区宝町2番地 日産自動車株式会社内

【氏名】 市川 浩之

【発明者】

【住所又は居所】 神奈川県横浜市神奈川区宝町2番地 日産自動車株式会社内

【氏名】 山梨 文徳

【発明者】

【住所又は居所】 神奈川県横浜市神奈川区宝町2番地 日産自動車株式会社内

【氏名】 塙 雅一

【特許出願人】

【識別番号】 000003997

【氏名又は名称】 日産自動車株式会社

【代表者】 ▲塙▼ 義一

【代理人】

【識別番号】 100083806

【弁理士】

【氏名又は名称】 三好 秀和

【電話番号】 03-3504-3075

【選任した代理人】

【識別番号】 100068342

【弁理士】

【氏名又は名称】 三好 保男

【選任した代理人】

【識別番号】 100100712

【弁理士】

【氏名又は名称】 岩▲崎▼ 幸邦

【選任した代理人】

【識別番号】 100087365

【弁理士】

【氏名又は名称】 栗原 彰

【選任した代理人】

【識別番号】 100079946

【弁理士】

【氏名又は名称】 横屋 超夫

【選任した代理人】

【識別番号】 100100929

【弁理士】

【氏名又は名称】 川又 澄雄

【選任した代理人】

【識別番号】 100095500

【弁理士】

【氏名又は名称】 伊藤 正和

【選任した代理人】

【識別番号】 100101247

【弁理士】

【氏名又は名称】 高橋 俊一

【選任した代理人】

【識別番号】 100098327

【弁理士】

【氏名又は名称】 高松 俊雄

【手数料の表示】

【予納台帳番号】 001982

【納付金額】 21,000円

【提出物件の目録】

【物件名】 明細書 1

【物件名】 図面 1

【物件名】 要約書 1

【包括委任状番号】 9707400

【プルーフの要否】 要

【書類名】 明細書

【発明の名称】 燃料改質装置

【特許請求の範囲】

【請求項1】 炭化水素と水蒸気から水素を生成する水蒸気改質反応と、炭化水素と酸化剤から水素を生成する部分酸化反応とを同時に進行させ、発熱反応である部分酸化反応の熱を利用して、吸熱反応である水蒸気改質反応の熱を賄う燃料改質装置において、

主に定常運転時に前記水蒸気改質反応と部分酸化反応とを促進する触媒を備える第1触媒部と、

前記第1触媒部の上流に位置し、主に起動時あるいは負荷が増大する方向の過渡運転時に、前記部分酸化反応を促進する触媒を備える第2触媒部と、

前記第2触媒部の上流から炭化水素燃料を供給する燃料供給手段と、

前記第1触媒部に対して酸化剤を供給する第1酸化剤供給手段と、

前記第2触媒部に対して酸化剤を供給する第2酸化剤供給手段と、

酸化剤供給源から前記第1酸化剤供給手段又は第2酸化剤供給手段へ流路を切り替える酸化剤流路制御弁と、

前記第1触媒部に対して水蒸気を供給する第1水蒸気供給手段と、

前記第2触媒部に対して水蒸気を供給する第2水蒸気供給手段と、

水蒸気供給源から前記第1水蒸気供給手段又は第2水蒸気供給手段へ流路を切り替える水蒸気流路制御弁と、

前記酸化剤流路制御弁と水蒸気流路制御弁とを制御するための制御装置とを備え、

前記制御装置は、起動時、あるいは加速信号の入力により、前記酸化剤供給源と第2酸化剤供給手段とが連通するように前記酸化剤流路制御弁を制御するとともに前記水蒸気供給源と第1水蒸気供給手段とが連通するように前記水蒸気流路制御弁を制御し、所定時間経過後に、前記酸化剤供給源と第1酸化剤供給手段とが連通するように前記酸化剤流路制御弁を制御するとともに前記水蒸気供給源と第2水蒸気供給手段とが連通するように前記水蒸気流路制御弁を制御することを特徴とする燃料改質装置。

【請求項2】 炭化水素と水蒸気から水素を生成する水蒸気改質反応と、炭化水素と酸化剤から水素を生成する部分酸化反応とを同時に進行させ、発熱反応である部分酸化反応の熱を利用して、吸熱反応である水蒸気改質反応の熱を賄う燃料改質装置において、

主に定常運転時に前記水蒸気改質反応と部分酸化反応とを促進する触媒を備える第1触媒部と、

前記第1触媒部の上流に位置し、主に起動時あるいは負荷が増大する方向の過渡運転時に、前記部分酸化反応を促進する触媒を備える第2触媒部と、

前記第2触媒部の上流から炭化水素燃料を供給する燃料供給手段と、

前記第1触媒部に対して酸化剤を供給する第1酸化剤供給手段と、

前記第2触媒部に対して酸化剤を供給する第2酸化剤供給手段と、

酸化剤供給源から前記第1酸化剤供給手段又は第2酸化剤供給手段へ流路を切り替える酸化剤流路制御弁と、

前記第1触媒部に対して水蒸気を供給する第1水蒸気供給手段と、

前記第2触媒部に対して水蒸気を供給する第2水蒸気供給手段と、

水蒸気供給源から前記第1水蒸気供給手段又は第2水蒸気供給手段へ流路を切り替える水蒸気流路制御弁と、

前記第1触媒部の温度を所定の位置で計測する温度計測手段と、

前記温度計測手段からの出力信号によって、前記酸化剤流路制御弁と水蒸気流路制御弁とを制御するための制御装置とを備え、

前記制御装置は、起動時あるいは加速信号の入力により、前記酸化剤供給源と第2酸化剤供給手段とが連通するように前記酸化剤流路制御弁を制御するとともに前記水蒸気供給源と第1水蒸気供給手段とが連通するように前記水蒸気流路制御弁を制御し、前記温度計測手段からの出力信号が所定値に達したところで、前記酸化剤供給源と第1酸化剤供給手段とが連通するように前記酸化剤流路制御弁を制御するとともに前記水蒸気供給源と第2水蒸気供給手段とが連通するように前記水蒸気流路制御弁を制御することを特徴とする燃料改質装置。

【請求項3】 炭化水素と水蒸気から水素を生成する水蒸気改質反応と、炭化水素と酸化剤から水素を生成する部分酸化反応とを同時に進行させ、発熱反応

である部分酸化反応の熱を利用して、吸熱反応である水蒸気改質反応の熱を賄う燃料改質装置において、

主に定常運転時に前記水蒸気改質反応と部分酸化反応とを促進する触媒を備える第1触媒部と、

前記第1触媒部の上流に位置し、主に起動時あるいは負荷が増大する方向の過渡運転時（加速時）に、前記部分酸化反応を促進する触媒を備える第2触媒部と、

前記第2触媒部の上流から炭化水素燃料を供給する燃料供給手段と、

前記第1触媒部に対して酸化剤、あるいは水蒸気を供給する第1原料供給手段と、

前記第2触媒部に対して酸化剤、あるいは水蒸気を供給する第2原料供給手段と、

酸化剤供給源から前記第1原料供給手段又は第2原料供給手段へ流路を切り替える酸化剤流路制御弁と、

水蒸気供給源から前記第1原料供給手段又は第2原料供給手段へ流路を切り替える水蒸気流路制御弁と、

前記酸化剤流路制御弁と水蒸気流路制御弁とを制御するための制御装置とを備え、

前記制御装置は、起動時、あるいは加速信号の入力により、前記酸化剤供給源と第2原料供給手段とが連通するように前記酸化剤流路制御弁を制御するとともに前記水蒸気供給源と第1原料供給手段とが連通するように前記水蒸気流路制御弁を制御し、所定時間経過後に、前記酸化剤供給源と第1原料供給手段とが連通するように前記酸化剤流路制御弁を制御するとともに前記水蒸気供給源と第2原料供給手段とが連通するように前記水蒸気流路制御弁を制御することを特徴とする燃料改質装置。

【請求項4】 炭化水素と水蒸気から水素を生成する水蒸気改質反応と、炭化水素と酸化剤から水素を生成する部分酸化反応とを同時に進行させ、発熱反応である部分酸化反応の熱を利用して、吸熱反応である水蒸気改質反応の熱を賄う燃料改質装置において、

主に定常運転時に前記水蒸気改質反応と部分酸化反応とを促進する触媒を備える第1触媒部と、

前記第1触媒部の上流に位置し、主に起動時あるいは負荷が増大する方向の過渡運転時（加速時）に、前記部分酸化反応を促進する触媒を備える第2触媒部と、

前記第2触媒部の上流から炭化水素燃料を供給する燃料供給手段と、

前記第1触媒部に対して酸化剤、あるいは水蒸気を供給する第1原料供給手段と、

前記第2触媒部に対して酸化剤、あるいは水蒸気を供給する第2原料供給手段と、

酸化剤供給源から前記第1原料供給手段又は第2原料供給手段へ流路を切り替える酸化剤流路制御弁と、

水蒸気供給源から前記第1原料供給手段又は第2原料供給手段へ流路を切り替える水蒸気流路制御弁と、

前記第1触媒部の温度を所定の位置で計測する温度計測手段と、

前記温度計測手段からの出力信号によって、前記酸化剤流路制御弁と水蒸気流路制御弁とを独立して制御するための制御装置とを備え、

前記制御装置は、起動時あるいは加速信号の入力により、酸化剤供給源と第2原料供給手段とが連通するように前記酸化剤流路制御弁を制御するとともに前記水蒸気供給源と第1原料供給手段とが連通するように前記水蒸気流路制御弁を制御し、前記温度計測手段からの出力信号が所定値に達したところで、前記酸化剤供給源と第1原料供給手段とが連通するように前記酸化剤流路制御弁を制御するとともに前記水蒸気供給源と第2原料供給手段とが連通するように前記水蒸気流路制御弁を制御することを特徴とする燃料改質装置。

【請求項5】 請求項2又は4に記載の燃料改質装置において、前記温度計測手段が第1触媒部の入口側ガス流路の所定位置に設置されていることを特徴とする燃料改質装置。

【請求項6】 請求項2又は4に記載の燃料改質装置において、前記温度計測手段が第1触媒部の触媒層内の所定位置に設置されていることを特徴とする燃

料改質装置。

【請求項7】 請求項2又は4に記載の燃料改質装置において、前記温度計測手段が第1触媒部の出口側ガス流路の所定位置に設置されていることを特徴とする燃料改質装置。

【請求項8】 請求項1～7のいずれかに記載の燃料改質装置において、前記炭化水素はメタノールであり、前記第1触媒部と第2触媒部とは銅系触媒又はパラジューム系触媒であることを特徴とする燃料改質装置。

【請求項9】 請求項1～7のいずれかに記載の燃料改質装置において、前記炭化水素はメタノールであり、前記第1触媒部は銅系触媒又はパラジューム系触媒であり、前記第2触媒部は酸化触媒であることを特徴とする燃料改質装置。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】

本発明は、炭化水素と水蒸気から水素を生成する水蒸気改質反応と、炭化水素と酸化剤から水素を生成する部分酸化反応とを同時に進行させ、発熱反応である部分酸化反応の熱を利用して、吸熱反応である水蒸気改質反応の熱を賄う燃料改質装置に関する。

【0002】

【従来の技術】

従来の燃料電池用メタノール改質装置としては、特開平11-092102号公報に記載されたものが知られている。この従来のメタノール改質装置は、燃料電池用改質装置内の温度分布を均一化することを目的としている。そしてその公報に記載された発明の第6実施例及び第7実施例は、触媒に対する酸化剤の供給位置を経時的に変化させることによって、局所的に酸化反応が継続することによる触媒の局所的昇温を防止し、内部でより多くの酸化反応を進行させ、起動時間の短縮を図るものである。

【0003】

【発明が解決しようとする課題】

しかしながら、このような従来の燃料電池用メタノール改質装置は、意図的に

発熱反応である酸化反応を局所的に行わない、言い換えれば酸化反応による発熱を分散させる構成であるため、触媒が活性化する温度まで昇温するのにより多くの燃料と時間を要し、起動時間を十分に短縮できないという問題点があった。

【0004】

すなわち、起動時に触媒の一部を活性化温度まで昇温できれば触媒表面で化学反応が始まり、その化学反応による発熱によって連鎖反応的に周囲の触媒が加熱され、反応が開始する。したがって、起動時間を短縮するためには、より短時間で触媒温度を活性化温度以上に加熱することが必要であるが、従来はそのような考慮がなされていなかった。

【0005】

本発明はこのような従来の技術的課題を解決するためになされたもので、短時間で触媒温度を活性化温度以上に加熱することにより起動時間を短縮することができる燃料改質装置を提供することを目的とする。

【0006】

【課題を解決するための手段】

請求項1の発明は、炭化水素と水蒸気から水素を生成する水蒸気改質反応と、炭化水素と酸化剤から水素を生成する部分酸化反応とを同時に進行させ、発熱反応である部分酸化反応の熱を利用して、吸熱反応である水蒸気改質反応の熱を賄う燃料改質装置において、主に定常運転時に前記水蒸気改質反応と部分酸化反応とを促進する触媒を備える第1触媒部と、前記第1触媒部の上流に位置し、主に起動時あるいは負荷が増大する方向の過渡運転時に、前記部分酸化反応を促進する触媒を備える第2触媒部と、前記第2触媒部の上流から炭化水素燃料を供給する燃料供給手段と、前記第1触媒部に対して酸化剤を供給する第1酸化剤供給手段と、前記第2触媒部に対して酸化剤を供給する第2酸化剤供給手段と、酸化剤供給源から前記第1酸化剤供給手段又は第2酸化剤供給手段へ流路を切り替える酸化剤流路制御弁と、前記第1触媒部に対して水蒸気を供給する第1水蒸気供給手段と、前記第2触媒部に対して水蒸気を供給する第2水蒸気供給手段と、水蒸気供給源から前記第1水蒸気供給手段又は第2水蒸気供給手段へ流路を切り替える水蒸気流路制御弁と、前記酸化剤流路制御弁と水蒸気流路制御弁とを制御する

ための制御装置とを備え、前記制御装置が、起動時、あるいは加速信号の入力により、前記酸化剤供給源と第2酸化剤供給手段とが連通するように前記酸化剤流路制御弁を制御するとともに前記水蒸気供給源と第1水蒸気供給手段とが連通するように前記水蒸気流路制御弁を制御し、所定時間経過後に、前記酸化剤供給源と第1酸化剤供給手段とが連通するように前記酸化剤流路制御弁を制御するとともに前記水蒸気供給源と第2水蒸気供給手段とが連通するように前記水蒸気流路制御弁を制御するものである。

【0007】

請求項2の発明は、炭化水素と水蒸気から水素を生成する水蒸気改質反応と、炭化水素と酸化剤から水素を生成する部分酸化反応とを同時に進行させ、発熱反応である部分酸化反応の熱を利用して、吸熱反応である水蒸気改質反応の熱を賄う燃料改質装置において、主に定常運転時に前記水蒸気改質反応と部分酸化反応とを促進する触媒を備える第1触媒部と、前記第1触媒部の上流に位置し、主に起動時あるいは負荷が増大する方向の過渡運転時に、前記部分酸化反応を促進する触媒を備える第2触媒部と、前記第2触媒部の上流から炭化水素燃料を供給する燃料供給手段と、前記第1触媒部に対して酸化剤を供給する第1酸化剤供給手段と、前記第2触媒部に対して酸化剤を供給する第2酸化剤供給手段と、酸化剤供給源から前記第1酸化剤供給手段又は第2酸化剤供給手段へ流路を切り替える酸化剤流路制御弁と、前記第1触媒部に対して水蒸気を供給する第1水蒸気供給手段と、前記第2触媒部に対して水蒸気を供給する第2水蒸気供給手段と、水蒸気供給源から前記第1水蒸気供給手段又は第2水蒸気供給手段へ流路を切り替える水蒸気流路制御弁と、前記第1触媒部の温度を所定の位置で計測する温度計測手段と、前記温度計測手段からの出力信号によって、前記酸化剤流路制御弁と水蒸気流路制御弁とを制御するための制御装置とを備え、前記制御装置が、起動時あるいは加速信号の入力により、前記酸化剤供給源と第2酸化剤供給手段とが連通するように前記酸化剤流路制御弁を制御するとともに前記水蒸気供給源と第1水蒸気供給手段とが連通するように前記水蒸気流路制御弁を制御し、前記温度計測手段からの出力信号が所定値に達したところで、前記酸化剤供給源と第1酸化剤供給手段とが連通するように前記酸化剤流路制御弁を制御するとともに前記水

蒸気供給源と第2水蒸気供給手段とが連通するように前記水蒸気流路制御弁を制御するものである。

【0008】

請求項3の発明は、炭化水素と水蒸気から水素を生成する水蒸気改質反応と、炭化水素と酸化剤から水素を生成する部分酸化反応とを同時に進行させ、発熱反応である部分酸化反応の熱を利用して、吸熱反応である水蒸気改質反応の熱を賄う燃料改質装置において、主に定常運転時に前記水蒸気改質反応と部分酸化反応とを促進する触媒を備える第1触媒部と、前記第1触媒部の上流に位置し、主に起動時あるいは負荷が増大する方向の過渡運転時（加速時）に、前記部分酸化反応を促進する触媒を備える第2触媒部と、前記第2触媒部の上流から炭化水素燃料を供給する燃料供給手段と、前記第1触媒部に対して酸化剤、あるいは水蒸気を供給する第1原料供給手段と、前記第2触媒部に対して酸化剤、あるいは水蒸気を供給する第2原料供給手段と、酸化剤供給源から前記第1原料供給手段又は第2原料供給手段へ流路を切り替える酸化剤流路制御弁と、水蒸気供給源から前記第1原料供給手段又は第2原料供給手段へ流路を切り替える水蒸気流路制御弁と、前記酸化剤流路制御弁と水蒸気流路制御弁とを制御するための制御装置とを備え、前記制御装置が、起動時、あるいは加速信号の入力により、前記酸化剤供給源と第2原料供給手段とが連通するように前記酸化剤流路制御弁を制御するとともに前記水蒸気供給源と第1原料供給手段とが連通するように前記水蒸気流路制御弁を制御し、所定時間経過後に、前記酸化剤供給源と第1原料供給手段とが連通するように前記酸化剤流路制御弁を制御するとともに前記水蒸気供給源と第2原料供給手段とが連通するように前記水蒸気流路制御弁を制御するものである。

【0009】

請求項4の発明は、炭化水素と水蒸気から水素を生成する水蒸気改質反応と、炭化水素と酸化剤から水素を生成する部分酸化反応とを同時に進行させ、発熱反応である部分酸化反応の熱を利用して、吸熱反応である水蒸気改質反応の熱を賄う燃料改質装置において、主に定常運転時に前記水蒸気改質反応と部分酸化反応とを促進する触媒を備える第1触媒部と、前記第1触媒部の上流に位置し、主に

起動時あるいは負荷が増大する方向の過渡運転時（加速時）に、前記部分酸化反応を促進する触媒を備える第2触媒部と、前記第2触媒部の上流から炭化水素燃料を供給する燃料供給手段と、前記第1触媒部に対して酸化剤、あるいは水蒸気を供給する第1原料供給手段と、前記第2触媒部に対して酸化剤、あるいは水蒸気を供給する第2原料供給手段と、酸化剤供給源から前記第1原料供給手段又は第2原料供給手段へ流路を切り替える酸化剤流路制御弁と、水蒸気供給源から前記第1原料供給手段又は第2原料供給手段へ流路を切り替える水蒸気流路制御弁と、前記第1触媒部の温度を所定の位置で計測する温度計測手段と、前記温度計測手段からの出力信号によって、前記酸化剤流路制御弁と水蒸気流路制御弁とを独立して制御するための制御装置とを備え、前記制御装置が、起動時あるいは加速信号の入力により、酸化剤供給源と第2原料供給手段とが連通するように前記酸化剤流路制御弁を制御するとともに前記水蒸気供給源と第1原料供給手段とが連通するように前記水蒸気流路制御弁を制御し、前記温度計測手段からの出力信号が所定値に達したところで、前記酸化剤供給源と第1原料供給手段とが連通するように前記酸化剤流路制御弁を制御するとともに前記水蒸気供給源と第2原料供給手段とが連通するように前記水蒸気流路制御弁を制御するものである。

【0010】

請求項5の発明は、請求項2又は4の燃料改質装置において、前記温度計測手段が第1触媒部の入口側ガス流路の所定位置に設置されているものである。

【0011】

請求項6の発明は、請求項2又は4の燃料改質装置において、前記温度計測手段が第1触媒部の触媒層内の所定位置に設置されているものである。

【0012】

請求項7の発明は、請求項2又は4の燃料改質装置において、前記温度計測手段が第1触媒部の出口側ガス流路の所定位置に設置されているものである。

【0013】

請求項8の発明は、請求項1～7の燃料改質装置において、前記炭化水素がメタノールであり、前記第1触媒部と第2触媒部とが銅系触媒又はパラジューム系触媒であるものである。

【0014】

請求項9の発明は、請求項1～7の燃料改質装置において、前記炭化水素がメタノールであり、前記第1触媒部が銅系触媒又はパラジューム系触媒であり、前記第2触媒部が酸化触媒であるものである。

【0015】

【発明の効果】

請求項1の発明によれば、起動時において、まず第2触媒部の上流から炭化水素燃料と酸化剤を供給し、第1触媒部の上流から水蒸気を供給する。これにより、第2触媒部で急峻な酸化反応が起こり、そこで発生した高温ガスによって下流の第1触媒部が速やかに加熱昇温される。同時に、第2触媒部で発生した一酸化炭素(CO)は、第1触媒部において水蒸気と反応(シフト反応=発熱反応)し、第1触媒部の加熱が一層促進される。この時、第2触媒部で生成したCOは、第1触媒部でシフト反応によって浄化される。

【0016】

そして起動から定常運転に移行する際には、所定時間経過後、第2触媒部の上流から炭化水素燃料と水蒸気を供給し、第1触媒部の上流から酸化剤を供給する。これにより、第2触媒部では水蒸気改質反応が起こり、吸熱によって急激に第2触媒部の温度が低下し、反応が停止する。第2触媒部を素通りした炭化水素燃料と水蒸気は、下流の第1触媒部で部分酸化反応と水蒸気改質反応に供され、水素リッチな改質ガスを生成する。

【0017】

このような作用によって、起動時間を短縮しつつ、改質装置下流の燃料電池被毒や排気悪化の要因となる副生成物の発生を最小限に抑えることができる。

【0018】

また、請求項2の発明によれば、請求項1の発明の効果に加えて、第1触媒部周辺の温度を起動から定常運転に移行する際の制御判断の基準とすることにより、よりスムーズに、かつ副生成物の発生を抑えて、起動から定常運転に移行することができる。

【0019】

また、請求項3の発明によれば、請求項1の発明の効果に加えて、第1触媒部、第2触媒部に対してそれぞれ酸化剤、水蒸気を供給する原料供給手段を統合することにより、燃料改質装置の構成を簡略化できる。

【0020】

また、請求項4の発明によれば、請求項3の発明の効果に加えて、第1触媒部周辺の温度を起動から定常運転に移行する際の制御判断の基準とすることにより、よりスムーズに、かつ副生成物の発生を抑えて、起動から定常運転に移行することができる。

【0021】

請求項5～7の発明によれば、請求項2又は4の発明の効果に加えて、第1触媒部の周辺の温度を起動から定常運転に移行する際の制御判断基準とすることにより、よりスムーズにかつ副生成物の発生を抑えて、起動から定常運転に移行することができる。

【0022】

また、請求項8の発明によれば、請求項1～7の発明の効果に加え、本装置をメタノールを燃料とする燃料電池システムに応用することができる。

【0023】

また、請求項9の発明によれば、請求項8の発明の効果に加え、一般的に広く用いられている酸化触媒を用いることによって、耐久性の向上とコストの低減が図れる。

【0024】

【発明の実施の形態】

以下、本発明の実施の形態を図に基づいて詳説する。

【0025】

(第1の実施の形態)

図1は、本発明の第1の実施の形態の燃料改質装置を示している。触媒部(1)は、主に定常運転時に水蒸気改質反応と部分酸化反応とを進行する触媒を備える触媒担体であり、反応器ケーシング14内の下流側に隙間無く装填されている。触媒部(2)は、主に起動時、あるいは負荷が増大する方向の過渡運転時

(加速時)に、部分酸化反応を促進する触媒を備える触媒担体であり、触媒部(1)1の上流側の反応器ケーシング14内に隙間無く装填されている。

【0026】

燃料供給手段は、図示しない炭化水素燃料供給装置から供給された炭化水素燃料を、触媒部(2)2の上流から噴霧あるいは噴射するものであり、触媒部(2)2の上流側の反応器ケーシング14に嵌合されている。

【0027】

酸化剤供給手段(1)4は、図示しない酸化剤供給装置から供給された酸化剤を、反応器ケーシング14内の触媒部(1)1と触媒部(2)2との間に形成されるガス流路内に極力均一に分布するように供給するものであり、反応器ケーシング14に嵌合されている。酸化剤供給手段(2)5は、図示しない酸化剤供給装置から供給された酸化剤を、反応器ケーシング14内の触媒部(2)2の上流側に形成されるガス流路内に極力均一に分布するように供給するものであり、反応器ケーシング14に嵌合されている。そして酸化剤流路制御弁6は、図示しない酸化剤供給装置から供給される酸化剤を、酸化剤供給手段(1)4あるいは酸化剤供給手段(2)5のいずれかに供給できるように、酸化剤供給装置と酸化剤供給手段(1)と酸化剤供給手段(2)とを接続する配管流路途中に設置されている。

【0028】

水蒸気供給手段(1)7は、図示しない水蒸気供給装置から供給された水蒸気を、反応器ケーシング14内の触媒部(1)1と触媒部(2)2との間に形成されるガス流路内に極力均一に分布するように供給するものであり、反応器ケーシング14に嵌合されている。水蒸気供給手段(2)8は、図示しない水蒸気供給装置から供給された水蒸気を、反応器ケーシング14内の触媒部(1)1の上流側に形成されるガス流路内に極力均一に分布するように供給するものであり、反応器ケーシング14に嵌合されている。水蒸気流路制御弁9は、図示しない水蒸気供給装置から供給される水蒸気を、水蒸気供給手段(1)7あるいは水蒸気供給手段(2)8のいずれかに供給できるように、水蒸気供給装置と水蒸気供給手段(1)と水蒸気供給手段(2)とを接続する配管流路途中に設置されている。

【0029】

制御装置10は、酸化剤流路制御弁6と水蒸気流路制御弁9とをそれぞれ独立して制御するためのものであり、酸化剤流路制御弁6及び水蒸気流路制御弁9と信号線で接続されている。

【0030】

次に、図2に示す制御フローチャートに従って本実施の形態の燃料改質装置の制御動作を説明する。

【0031】

外部からの起動信号の入力により、この制御フローに入る。そしてまず、ステップS10では、酸化剤流路制御弁6が制御装置10からの信号により、酸化剤供給装置と酸化剤供給手段(2)5とが連通するように流路を切り替える。同時に、水蒸気流路制御弁9が制御装置10からの信号により、水蒸気供給装置と水蒸気供給手段(1)7とが連通するように流路を切り替える。

【0032】

そして所定の量に調量された炭化水素燃料、酸化剤、水蒸気が燃料改質装置に供給されると、触媒部(2)2ではその上流から供給された炭化水素燃料と酸化剤とによって(部分)酸化反応が起こり、急峻な発熱によって触媒部(2)2の温度が上昇するとともに発生したガスによって下流の触媒部(1)1も加熱される。同時に、触媒部(1)1では、触媒部(2)2の(部分)酸化反応で発生した一酸化炭素と触媒部(1)1の上流から供給される水蒸気とによってシフト反応が起こり、自己発熱によってさらに加熱される。その際、触媒部(2)2で発生した一酸化炭素は、触媒部(1)1のシフト反応によって浄化される。

【0033】

次のステップS20では、ステップS10から予め設定した所定の時間 τ が経過したかどうかを判断する。所定の時間 τ が経過したならば、ステップS30に進む。一方、所定の時間 τ が経過していない場合は、待機する。

【0034】

そしてステップS30では、酸化剤流路制御弁6が制御装置10からの信号により、酸化剤供給装置と酸化剤供給手段(1)4とが連通するように流路を切り

替える。同時に、水蒸気流路制御弁（9）が制御装置10からの信号により、水蒸気供給装置と水蒸気供給手段（2）8とが連通するように流路を切り替える。

【0035】

触媒部（2）2では、その上流から供給される炭化水素燃料と水蒸気によって吸熱反応である水蒸気改質反応が起こり、触媒部（2）2の温度が低下してすべての反応が停止する。そのため、触媒部（2）の上流から供給された炭化水素燃料と水蒸気は、触媒部（2）で反応することなく触媒部（2）を素通りして触媒部1に達する。そして触媒部（1）1では、触媒部（2）を素通りしてきた炭化水素燃料と水蒸気と触媒部（1）の上流から供給される酸化剤とによって水蒸気改質反応と部分酸化反応とが起こり、水素リッチな改質ガスを生成する。これらよって一連の処理は終了する。

【0036】

図3は、この第1の実施の形態の燃料改質装置における、時間経過に伴う酸化剤、水蒸気の供給位置の変化、また触媒部（1）、（2）の温度変化とを示している。この図3に示すように、第1の実施の形態の燃料改質装置では、触媒部（2）での急峻な（部分）酸化反応によって速やかに触媒部（1）を加熱すると同時に、発生した一酸化炭素を触媒部（1）で水蒸気と反応させることによってシフト反応を起こさせることによって、起動時間を短縮しつつ、改質装置下流の燃料電池被毒や排気悪化の要因となる副生成物の発生を最小限に抑えることができる。

【0037】

（第2の実施の形態）

図4は、本発明の第2の実施の形態の燃料改質装置を示している。第2の実施の形態の燃料改質装置の基本構成は、図1に示した第1の実施の形態と同様であるが、次の点が異なる。温度計測手段11が触媒部（1）1の近傍で反応器ケーシング14に嵌合されていて、触媒部（1）の近傍の温度を測定するようになっている。そしてこの温度計測手段11で測定されたデータは、制御装置10に送るようになっている。

【0038】

次に、図5に示す制御フローチャートに従って、第2の実施の形態の燃料改質装置の制御動作を説明する。第2の実施の形態の基本的な制御動作は、図2に示した第1の実施の形態のものと同様であるが、以下の点が異なる。

【0039】

ステップS20'では、温度計測手段11からの信号によって、触媒部(1)の近傍の温度が所定の温度に達したかどうかを判断する。所定の温度に達したならば、ステップS30に進む。一方、所定の温度に達していない場合には待機する。

【0040】

図6に時間経過に伴う酸化剤、水蒸気の供給位置の変化と触媒部(1), (2)の温度変化を示す。この図6に示すように、第2の実施の形態の燃料改質装置では、触媒部(1)の近傍の温度を起動から定常運転に移行する際の制御判断の基準とすることにより、第1の実施の形態の燃料改質装置の作用効果に加え、さらなる起動時間の短縮が図れると同時に、よりスムーズに、かつ副生成物の発生を抑えて起動から定常運転に移行することができる。

【0041】

(第3の実施の形態)

図7は、本発明の第3の実施の形態の燃料改質装置を示している。第3の実施の形態の基本構成は図4に示した第2実施の形態と同様であるが、以下の点が異なる。温度計測手段11は、反応器ケーシング14内の触媒部(1)1の上流側に形成されるガス流路内に位置するように、反応器ケーシング14に嵌合されていて、触媒部(1)の上流のガス温度を測定するようにしてある。この温度計測手段11で測定されたデータは、制御装置10に送られる。

【0042】

第3の実施の形態の燃料改質装置の基本的な制御動作は第2実施の形態と同様である。そして、第3の実施の形態の場合、第2の実施の形態の作用効果に加え、触媒部(2)からのガス温度を直接測定することにより、起動状態から定常運転状態への移行時期をいち早く検出でき、さらなる起動時間の短縮を図ることができる。

【0043】

(第4の実施の形態)

図8は、本発明の第4の実施の形態の形態の燃料改質装置を示している。第4の実施の形態の燃料改質装置の基本構成は図4に示した第2の実施の形態と同様であるが、以下の点が異なる。温度計測手段11は、触媒部(1)1に内挿されるように反応器ケーシング14に嵌合されており、触媒部(1)の内部の温度を測定するようにしてある。そして温度計測手段11で測定されたデータは、制御装置10に送られる。

【0044】

第4の実施の形態の燃料改質装置の基本的な制御動作は、第2実施の形態と同様である。この第4の実施の形態の作用効果としては、第2の実施の形態に関する効果に加えて、触媒部(1)の内部温度を直接測定することにより、起動状態から定常運転状態へ移行する際の失火などを防止し、確実に定常運転状態へ移行させることができる。

【0045】

(第5の実施の形態)

図9は、本発明の第5の実施の形態の形態の燃料改質装置を示している。第5の実施の形態の燃料改質装置の基本構成は図4に示した第2実施の形態と同様であるが、以下の点が異なる。温度計測手段11は、反応器ケーシング14内の触媒部(1)1の下流側に形成されるガス流路内に位置するように反応器ケーシング14に嵌合されていて、触媒部(1)の下流のガス温度を測定し、温度測定データを制御装置10に送るようにしてある。

【0046】

第5の実施の形態の燃料改質装置の基本的な制御動作は第2実施の形態と同様である。この第5の実施の形態では、第2の実施の形態の作用効果に加えて、触媒部(1)の下流のガス温度、従って比較的低いガス温度を測定するので、簡便な温度計測手段を用いることができ、コストの低減が図れ、同時に温度計測手段の耐久性が向上できる。

【0047】

(第6の実施の形態)

図10は、本発明の第6実施の形態の形態の燃料改質装置を示している。第6の実施の形態の燃料改質装置の基本構成は図1に示した第1の実施の形態と同様であるが、以下の点が異なる。原料供給手段(1)12は、図示しない酸化剤供給装置から供給された酸化剤、あるいは図示しない水蒸気供給装置から供給された水蒸気のいずれか一方を、反応器ケーシング14内の触媒部(1)1と触媒部(2)2との間に形成されるガス流路内に極力均一に分布するように供給するものであり、反応器ケーシング14に嵌合されている。原料供給手段(2)13は、図示しない酸化剤供給装置から供給された酸化剤、あるいは図示しない水蒸気供給装置から供給された水蒸気のいずれか一方を、反応器ケーシング14内の触媒部(2)2の上流側に形成されるガス流路内に、極力均一に分布するように供給するものであり、反応器ケーシング14に嵌合されている。

【0048】

次に、図11に示す制御フローチャートに従って第6の実施の形態の燃料改質装置の制御動作を説明する。基本的な制御動作は図2に示した第1の実施の形態のものと同様であるが、以下の点が異なる。

【0049】

まずステップS10では、酸化剤流路制御弁6が制御装置10からの信号により、酸化剤供給装置と原料供給手段(2)13とが連通するように流路を切り替える。同時に、水蒸気流路制御弁9が制御装置10からの信号により、水蒸気供給装置と原料供給手段(1)12とが連通するように流路を切り替える。

【0050】

そして所定の量に調量された炭化水素燃料、酸化剤、水蒸気が燃料改質装置に供給されると、触媒部(2)2ではその上流から供給された炭化水素燃料と酸化剤とによって(部分)酸化反応が起こり、急峻な発熱によって触媒部(2)2の温度が上昇するとともに発生したガスによって下流の触媒部(1)1も加熱される。同時に、触媒部(1)1では、触媒部(2)2の(部分)酸化反応で発生した一酸化炭素と、触媒部(1)1の上流から供給される水蒸気とによってシフト反応が起こり、自己発熱によって更に加熱される。その際、触媒部(2)2で発

生した一酸化炭素は、触媒部（1）のシフト反応によって浄化される。

【0051】

続くステップS20では、ステップS10から所定の時間が経過したかどうかを判断する。所定の時間 τ が経過したならば、ステップS30に進む。一方、所定の時間 τ が経過していない場合は待機する。

【0052】

ステップS30では、酸化剤流路制御弁6が制御装置10からの信号により、酸化剤供給装置と原料供給手段（1）12とが連通するように流路を切り替える。同時に、水蒸気流路制御弁9が制御装置10からの信号により、水蒸気供給装置と原料供給手段（2）13とが連通するように流路を切り替える。触媒部（2）2では、その上流から供給される炭化水素燃料と水蒸気によって吸熱反応である水蒸気改質反応が起こり、触媒部（2）2の温度が低下してすべての反応が停止する。そのため、触媒部（2）2の上流から供給された炭化水素燃料と水蒸気は、触媒部（2）2で反応することなく触媒部（2）2を素通りして触媒部（1）1に達する。

【0053】

触媒部（1）1では、触媒部（2）2を素通りしてきた炭化水素燃料と水蒸気と触媒部（1）1の上流から供給される酸化剤によって、水蒸気改質反応と部分酸化反応とが起こり、水素リッチな改質ガスを生成する。これで一連の処理は終了する。

【0054】

図12に時間経過に伴う、酸化剤、水蒸気の供給位置の変化と、触媒部（1）、（2）の温度変化を示す。この図12に示すように、第6の実施の形態では、酸化剤供給手段（1）4と水蒸気供給手段（1）7とを統合して原料供給手段（1）12とし、また酸化剤供給手段（2）5と水蒸気供給手段（2）8とを統合して原料供給手段（2）13としたことにより、第1の実施の形態による作用効果に加え、燃料改質装置の構成を小形、簡略化できる。

【0055】

なお、この第6の実施の形態の燃料改質装置に対して、所定の時間 τ の経過を

待って酸化剤流路制御弁6、水蒸気流路制御弁9を切り替える構成の代わりに、第2～第5の実施の形態のように温度計測手段11を用い、各場所の温度を測定し、それが所定値に到達した際にこれらの制御弁6、9を切換える制御をする構成にすることもできる。

【図面の簡単な説明】

【図1】

本発明の第1の実施の形態の燃料改質装置の構成を示す断面図。

【図2】

第1の実施の形態による制御動作を示すフローチャート。

【図3】

第1の実施の形態における酸化剤、水蒸気の流路切替制御、触媒部温度の時間変化を示すタイミングチャート。

【図4】

本発明の第2の実施の形態の燃料改質装置の構成を示す断面図。

【図5】

第2の実施の形態による制御動作を示すフローチャート。

【図6】

第2の実施の形態における酸化剤、水蒸気の流路切替制御、触媒部温度の時間変化を示すタイミングチャート。

【図7】

本発明の第3の実施の形態の燃料改質装置の構成を示す断面図。

【図8】

本発明の第4の実施の形態の燃料改質装置の構成を示す断面図。

【図9】

本発明の第5の実施の形態の燃料改質装置の構成を示す断面図。

【図10】

本発明の第6の実施の形態の燃料改質装置の構成を示す断面図。

【図11】

第6の実施の形態による制御動作を示すフローチャート。

【図12】

第6の実施の形態における酸化剤、水蒸気の流路切替制御、触媒部温度の時間変化を示すタイミングチャート。

【符号の説明】

1 触媒部（1）

2 触媒部（2）

3 燃料供給手段

4 酸化剤供給手段（1）

5 酸化剤供給手段（2）

6 酸化剤流路制御弁

7 水蒸気供給手段（1）

8 水蒸気供給手段（2）

9 水蒸気流路制御弁

10 制御装置

11 温度計測手段

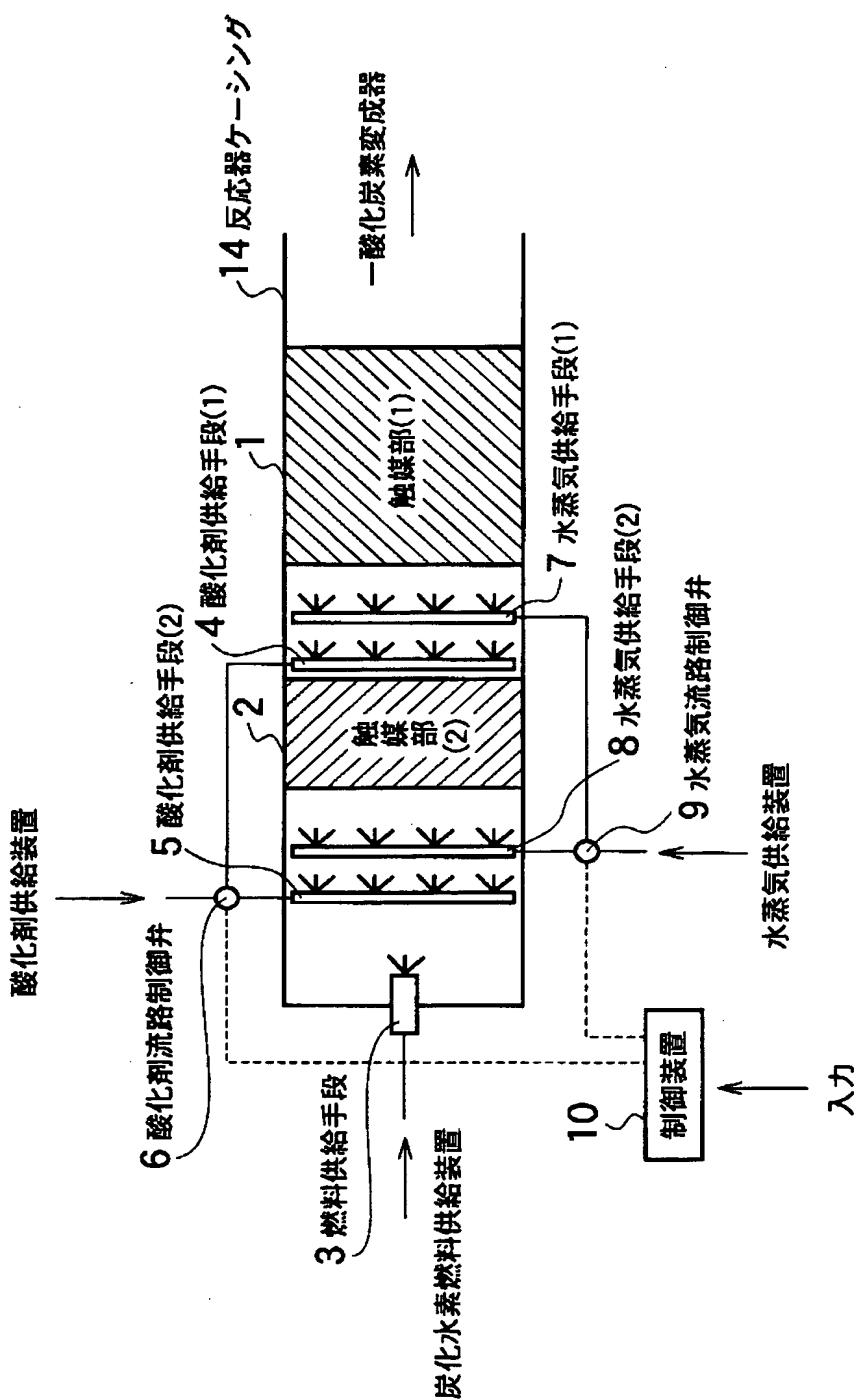
12 原料供給手段（1）

13 原料供給手段（2）

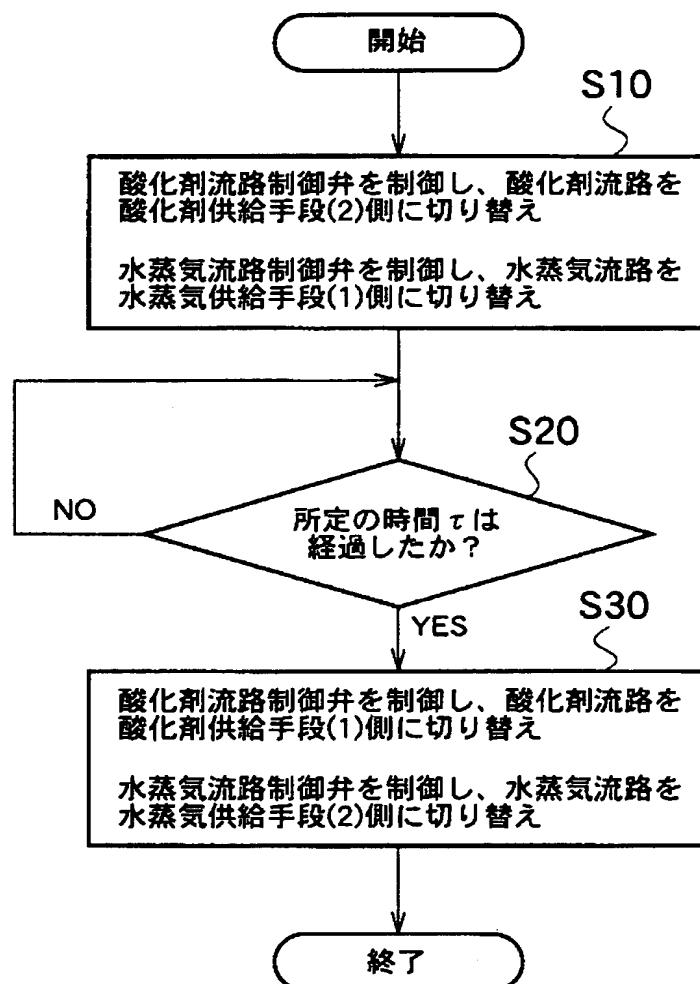
14 反応器ケーシング

【書類名】 図面

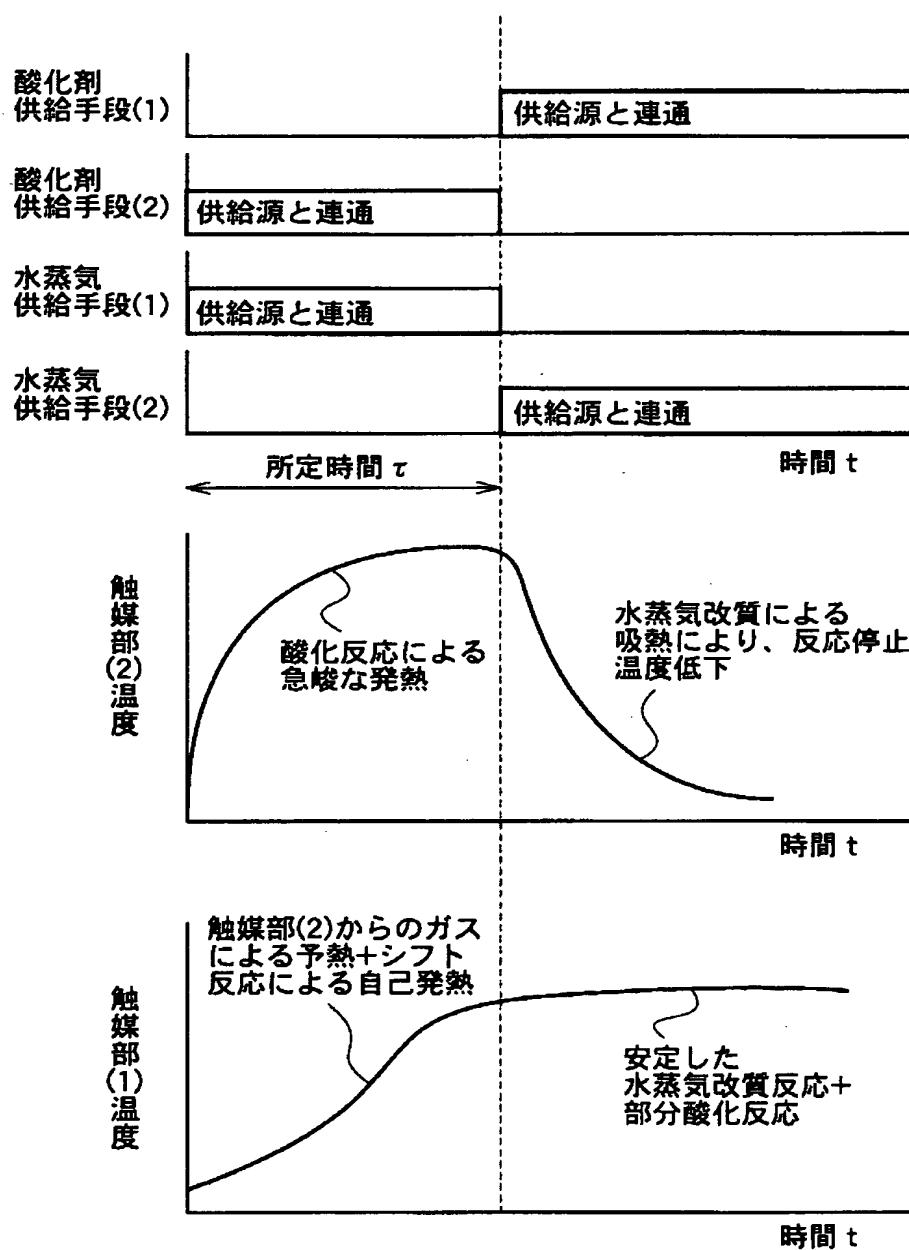
【図1】



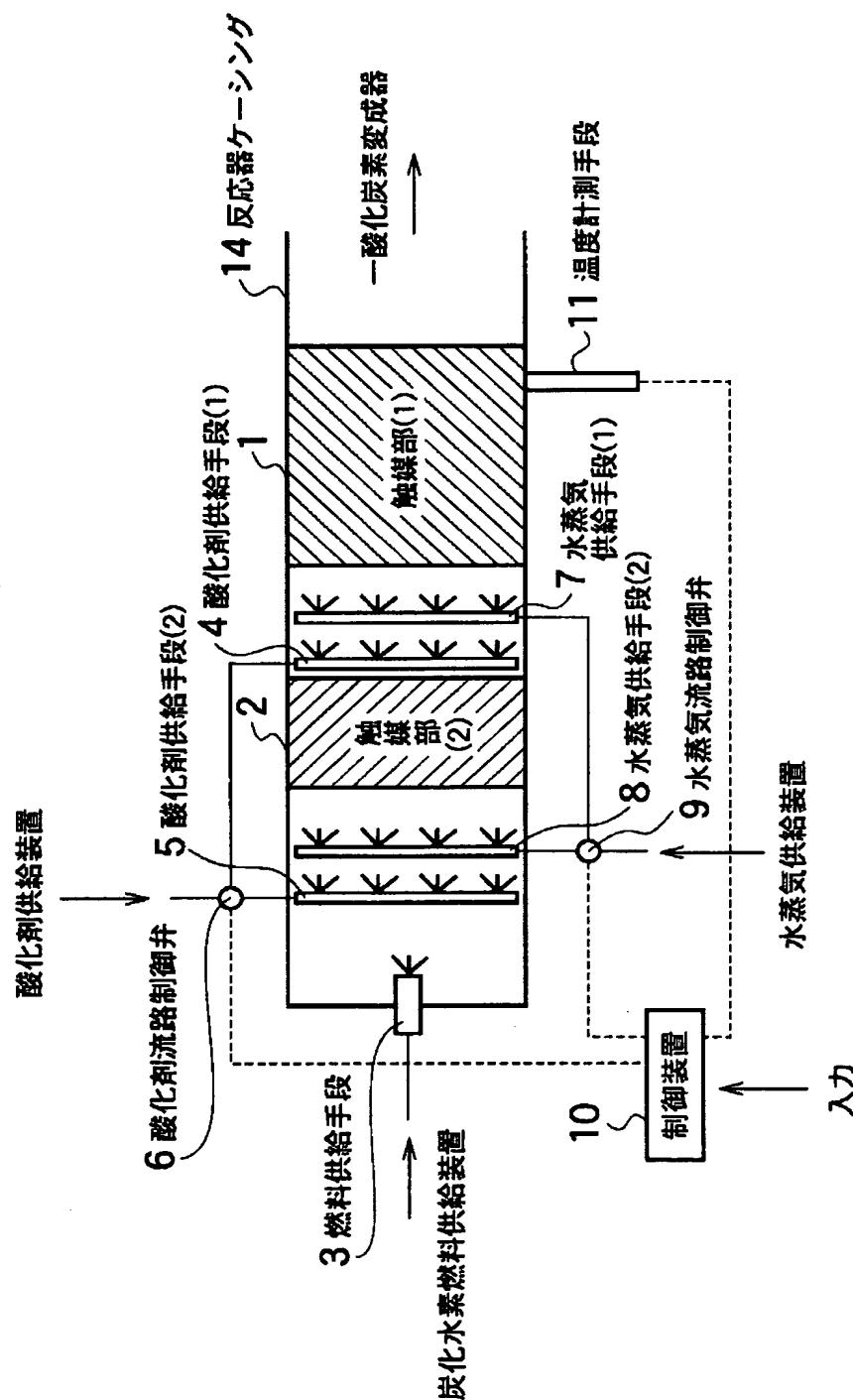
【図2】



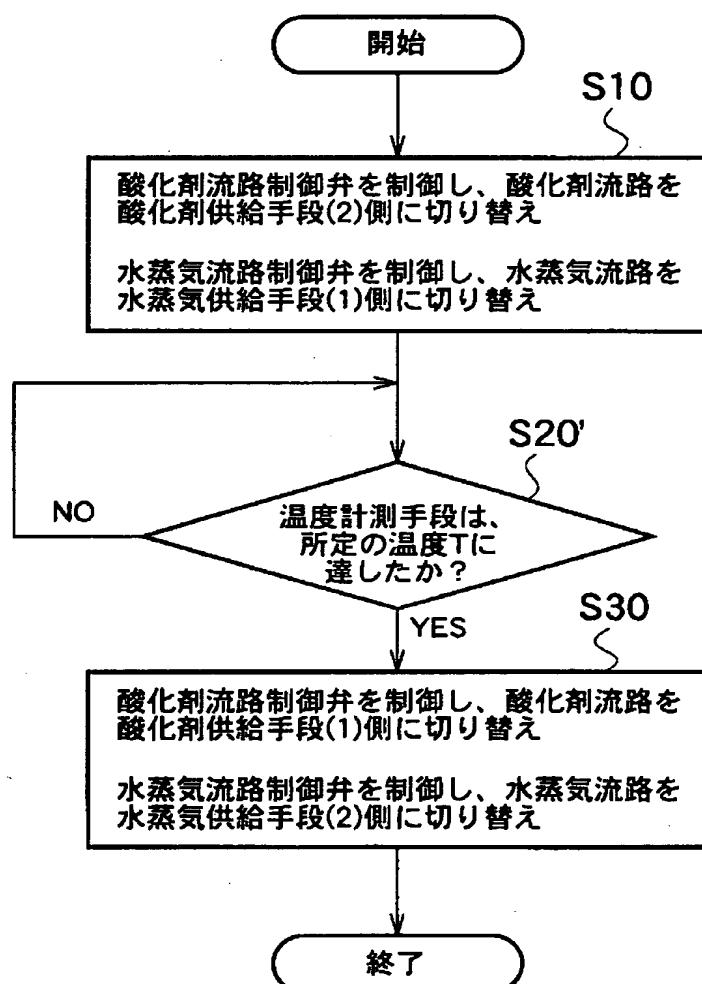
【図3】



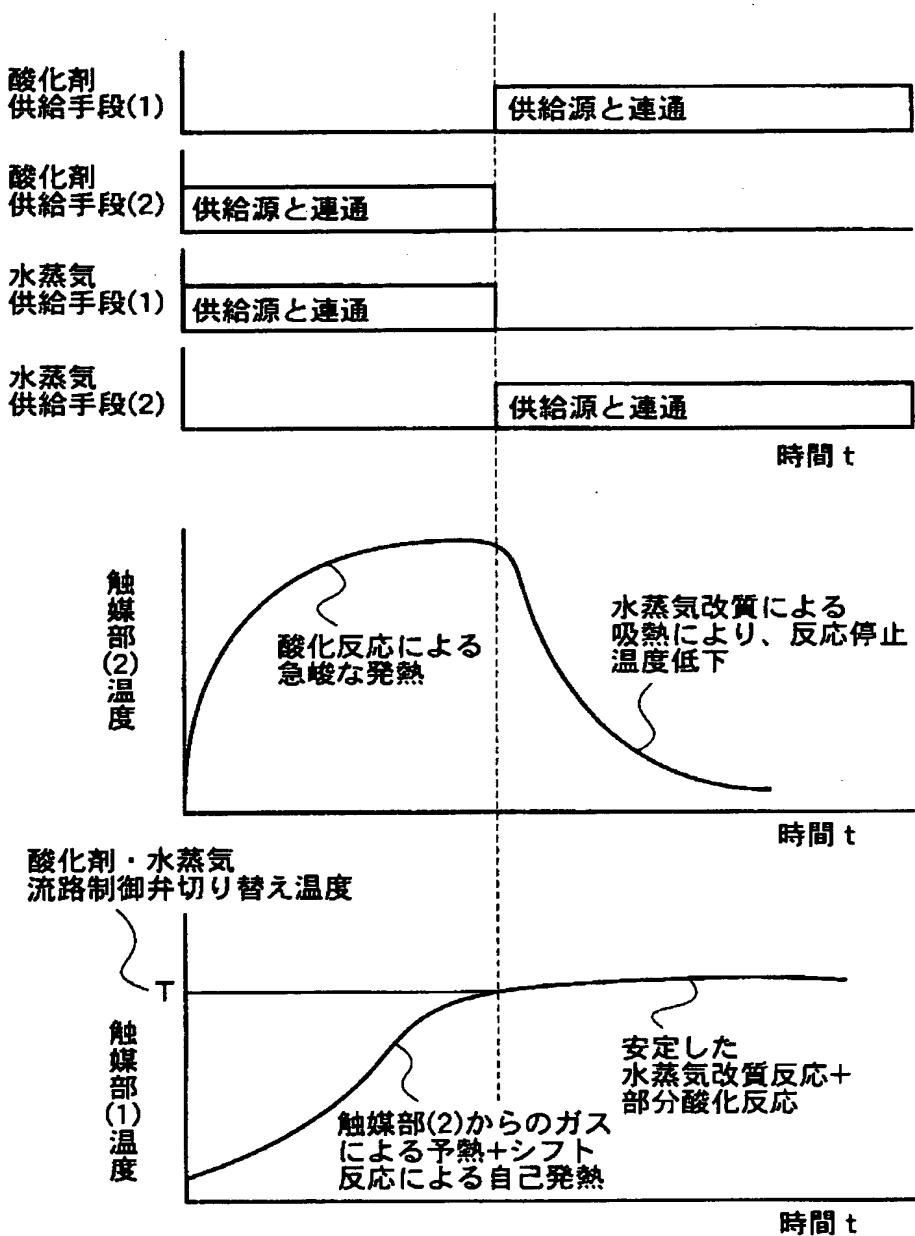
【図4】



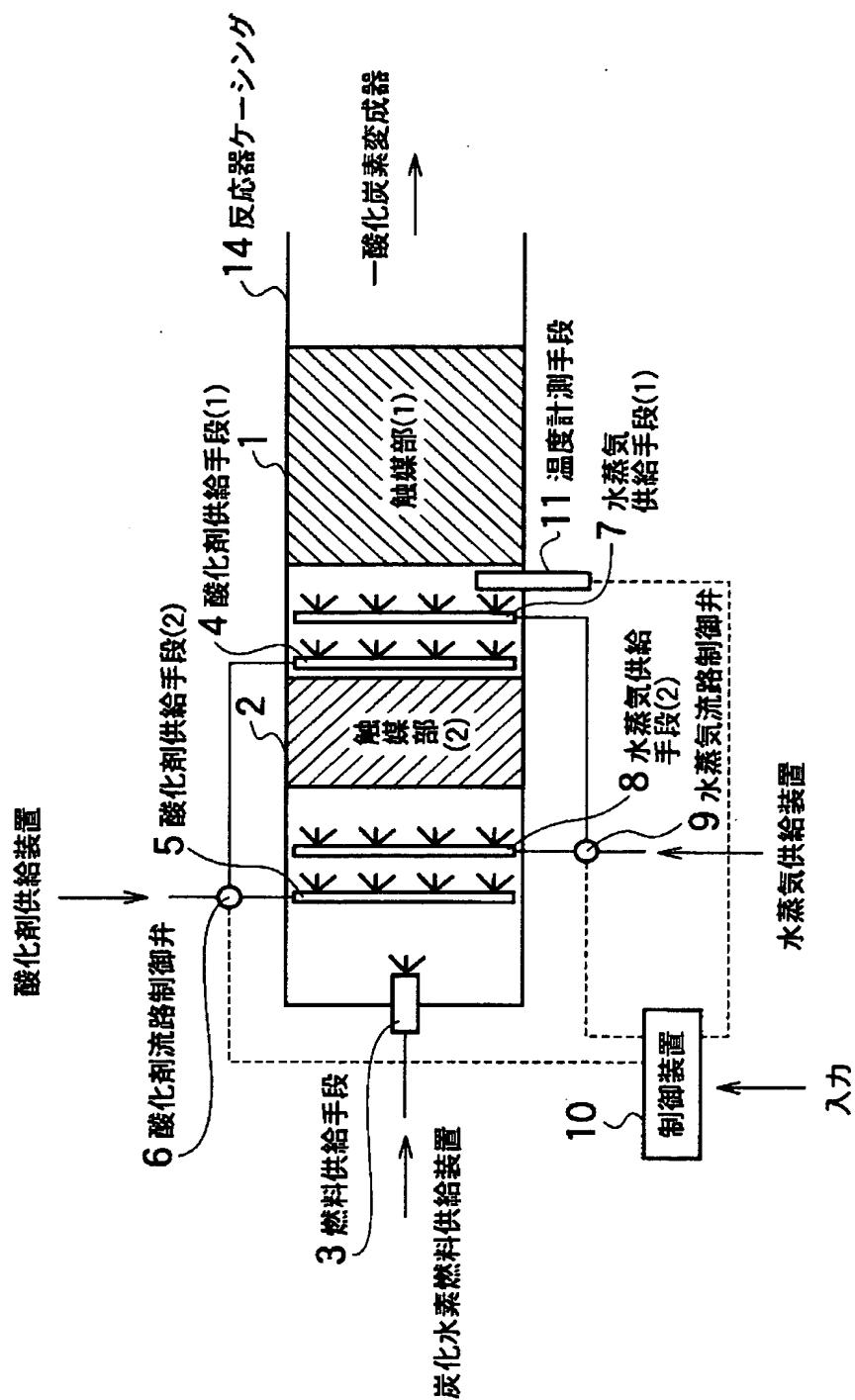
【図5】



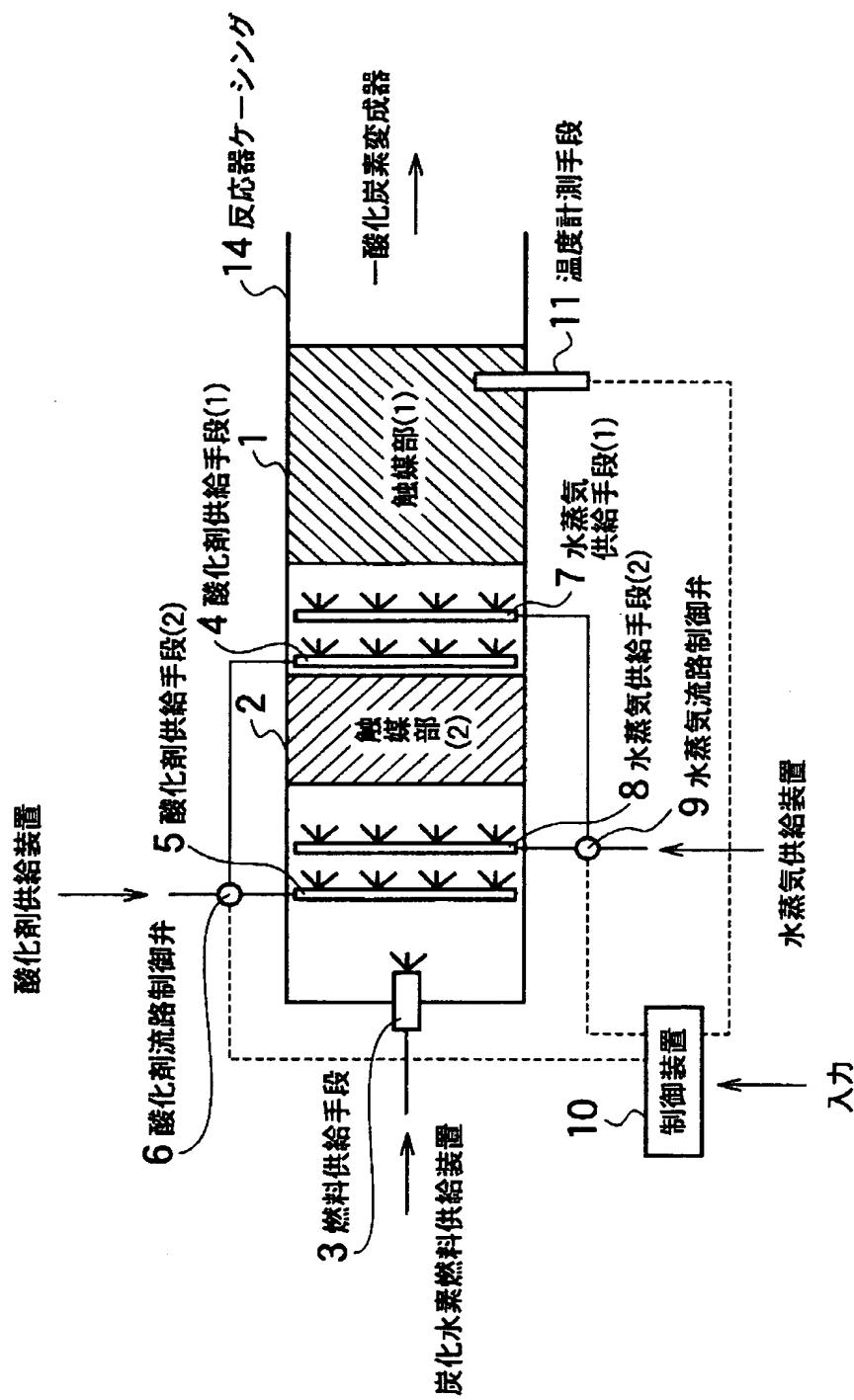
【図6】



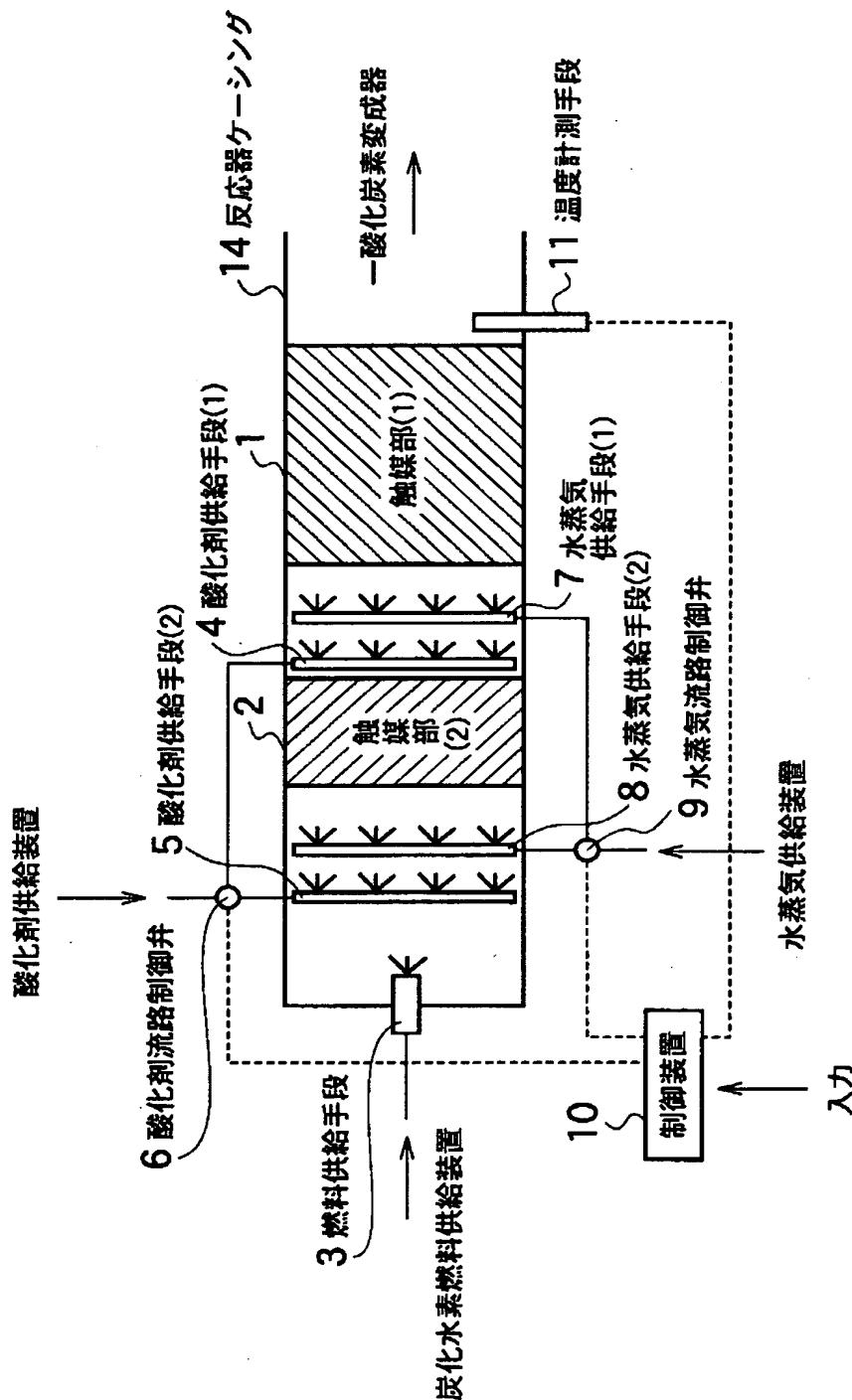
【図7】



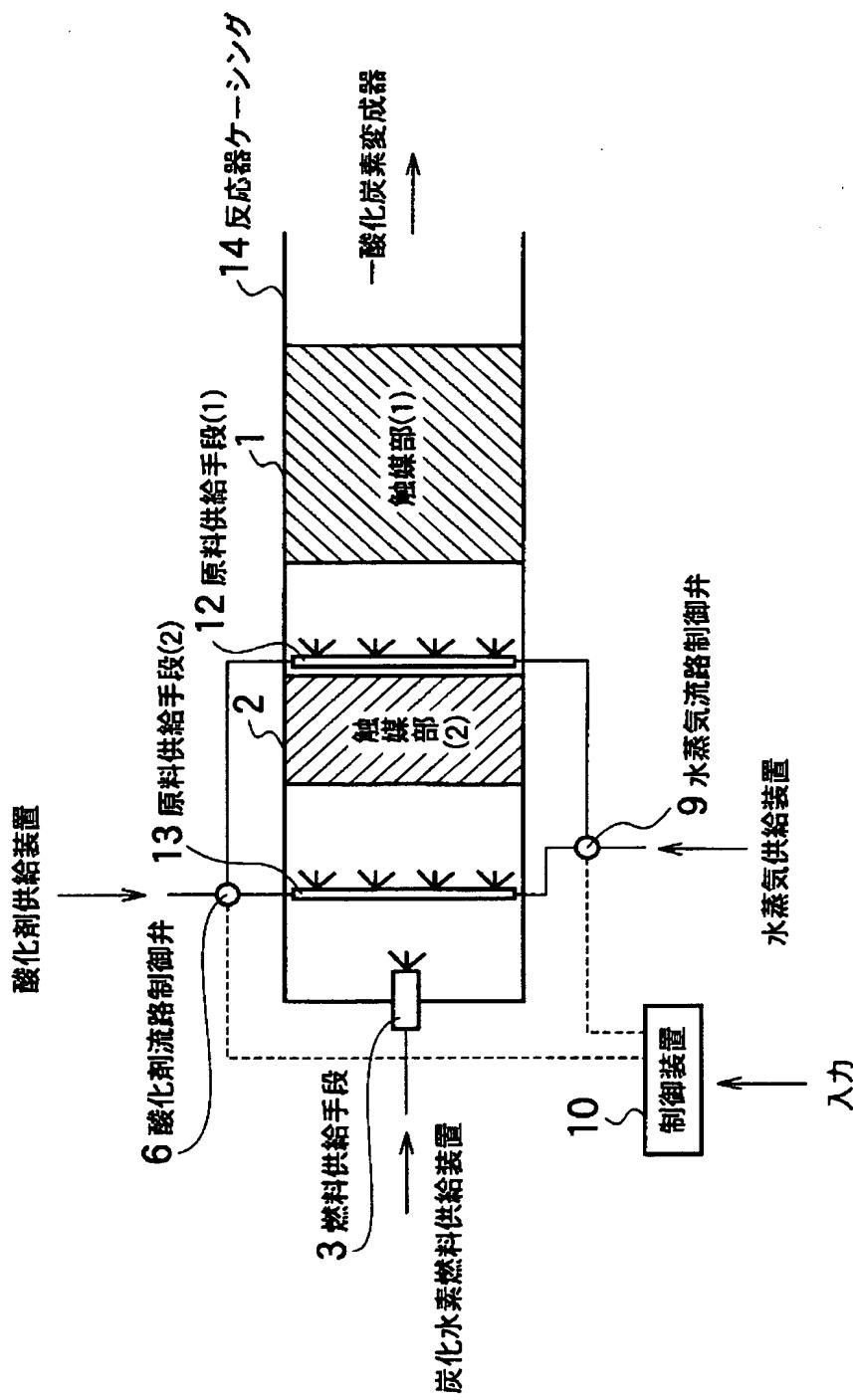
【図8】



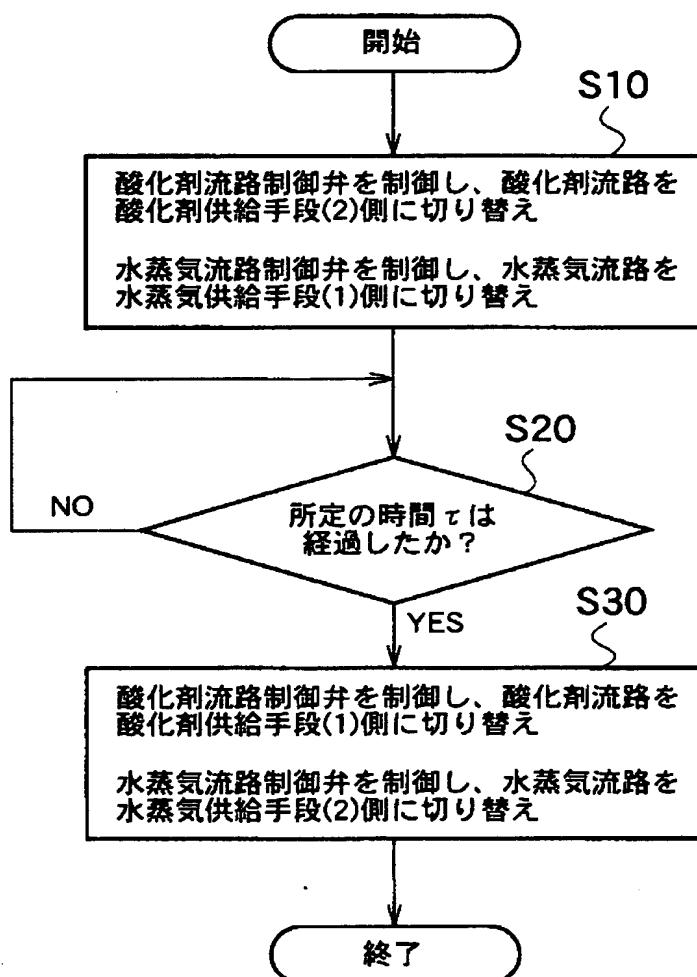
【図9】



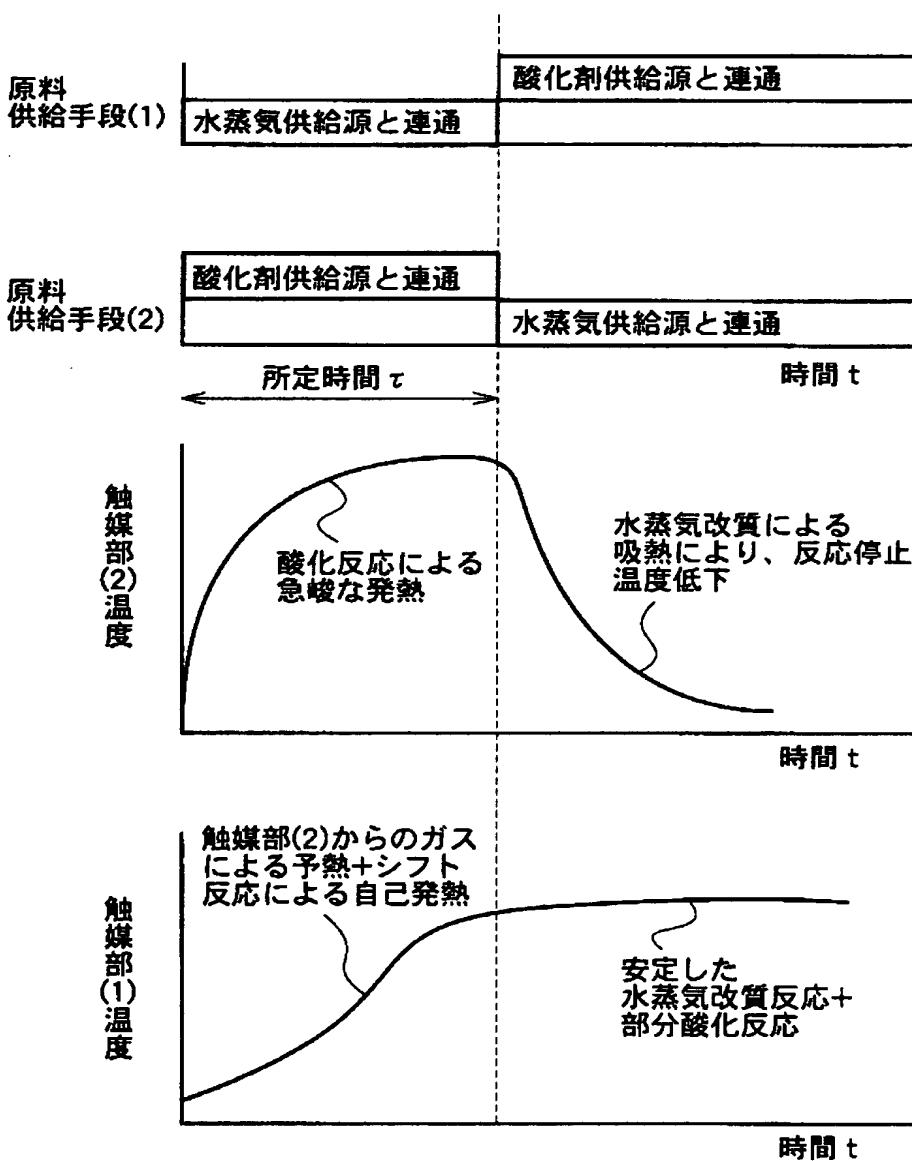
【図10】



【図11】



【図12】



【書類名】 要約書

【要約】

【課題】 燃料改質装置において、短時間で触媒温度を活性化温度以上に加熱することにより起動時間を短縮する。

【解決手段】 起動時には、第2触媒部2の上流から炭化水素燃料と酸化剤を供給し、第1触媒部1の上流から水蒸気を供給することにより、第2触媒部2で急峻な酸化反応を起こし、そこで発生した高温ガスによって下流の第1触媒部1を加熱昇温させる。そして起動から定常運転に移行する際には、所定時間経過後、第2触媒部2の上流から炭化水素燃料と水蒸気を供給し、第1触媒部1の上流から酸化剤を供給することにより、第2触媒部2で水蒸気改質反応を起こし、吸熱によって急激に第2触媒部2の温度を低下させ、反応を停止させる。そして第2触媒部2を素通りした炭化水素燃料と水蒸気を、下流の第1触媒部1で部分酸化反応と水蒸気改質反応に供し、水素リッチな改質ガスを生成する。

【選択図】 図3

出願人履歴情報

識別番号 [000003997]

1. 変更年月日 1990年 8月31日

[変更理由] 新規登録

住 所 神奈川県横浜市神奈川区宝町2番地

氏 名 日産自動車株式会社